

0-735593

На правах рукописи

ЗЕНКОВ ЕВГЕНИЙ ВЯЧЕСЛАВОВИЧ

ЭФФЕКТЫ ЭЛЕКТРОННОЙ НЕОДНОРОДНОСТИ  
В ОПТИЧЕСКИХ СПЕКТРАХ  
СИЛЬНОКОРРЕЛИРОВАННЫХ ОКСИДОВ

01.04.07. - физика конденсированного состояния

Автореферат  
диссертации на соискание учёной степени  
кандидата **физико-математических** наук

*Зенков*

Екатеринбург 2003

Работа выполнена в Уральском государственном университете на кафедре теоретической физики.

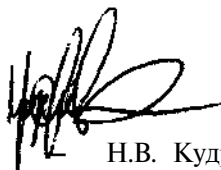
- Научный руководитель – доктор **физико-математических** наук, профессор А.С. Москвин
- Официальные оппоненты – доктор **физико-математических наук**, ведущий научный сотрудник, профессор И.И. **Ляпилин**  
доктор **физико-математических** наук, ведущий научный сотрудник, В.Я. Митрофанов
- Ведущее учреждение – Уральский государственный **технический** университет (**УГТУ - УПИ**).

**Защита** состоится " 18 " *июня* 2003 г.  
в \_\_\_\_\_ часов на заседании диссертационного совета **Д212.286.01**  
по защите докторских диссертаций в Уральском государственном университете (620083, г. Екатеринбург, К-83, пр. Ленина 51, комн. 248)

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Уральского государственного университета.

Автореферат разослан " 14 " *мая* 2003 г.

Учёный секретарь  
диссертационного совета,  
доктор **физико-математических** наук



Н.В. Кудреватых.

# ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

**Актуальность темы.** Уже более 15 лет сильно коррелированные (СК) оксиды находятся в центре внимания физического сообщества. Сюда относятся медь-кислородные высокотемпературные сверхпроводники (ВТСП), такие как  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , их несверхпроводящие аналоги ( $\text{CuO}$ ,  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_4$  и др.) и манганиты с колоссальным магнитосопротивлением (КМС) -  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ,  $(\text{La}_{1-y}\text{Pr}_y)_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$  и др. Интерес к этим системам обусловлен сочетанием в них целого ряда уникальных свойств, ставящих фундаментальные научные проблемы и открывающих широкие перспективы технических приложений.

Явления ВТСП и КМС представляют собой лишь наиболее яркие примеры необычного физического поведения СК оксидов. Многочисленные аномалии наблюдаются также в их электронных, магнитных и транспортных свойствах. Особое значение имеют оптические исследования, которые позволяют непосредственно изучать электронную структуру в широком диапазоне энергий. Несмотря на различия в кристаллической и электронной структуре СК оксидов, сравнительный анализ обширного экспериментального материала позволяет говорить об универсальном характере их оптического отклика в широком диапазоне частот ( $\sim 10^2 - 10^4 \text{ cm}^{-1}$ ), среди проявлений которого отметим сильное оптическое поглощение в среднем инфракрасном диапазоне (известная проблема "MIR - полосы") и нефермижидкостное ("маргинальное") поведение низкочастотной оптической проводимости купратов и манганитов в проводящей фазе.

В последнее время результаты комплексных экспериментальных исследований оптических, транспортных, магнитных [1, 2], а в случае ВТСП и сверхпроводящих свойств [3, 4] СК оксидов выдвигают на первый план гипотезу об их сильной неоднородности. Результаты новейших экспериментов убедительно продемонстрировали существование электронных неоднородностей наноскопического масштаба в ВТСП керамике  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  [3, 5] и позволяют говорить о сосуществовании в этой системе двух различных электронных фаз с разными сверхпроводящими свойствами. Родственные результаты получены и для манганитов. Пространственно неоднородная структура в виде проводящих ферромагнитных (ФМ) областей, распределённых в изолирующей антиферромагнитной (АФ)

матрице была непосредственно визуализирована в тонких плёнках  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$  оптическими методами [1] и в исследованиях по малоугловому рассеянию нейтронов [6].

Полученные результаты позволяют рассматривать **наноскопическое** разделение фаз и неоднородность, как **свойства**, внутренне присущие СК оксидам, что влечёт за собой пересмотр общепринятых теоретических подходов и традиционных взглядов на эти системы, а также позволяет надеяться на их использование в нанотехнологиях.

По нашему мнению, именно сильная электронная неоднородность является тем фактором, который даёт возможность с единых позиций объяснить целый ряд универсальных закономерностей в физике купратов и манганитов, а учёт её должен быть неотъемлемой составляющей полной теоретической модели СК оксидов. В этом контексте особую актуальность приобретает разработка общих подходов, не связанных с микроскопическими особенностями конкретных систем и позволяющих получать физически прозрачные результаты.

Попытка реализации такой программы предпринята в настоящей работе. В ней последовательно разрабатывается общий подход к описанию эффектов электронной **неоднородности** в оптических спектрах СК оксидов.

Целью работы является: теоретическое исследование **оптических** спектров СК оксидов, включающее: выяснение роли **наноскопической** электронной неоднородности в формировании их оптических спектров, построение модельной теории оптической проводимости **допированных** СК оксидов, расчёт оптических спектров конкретных систем и объяснение экспериментальных закономерностей в физике купратов ( $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ), ванадатов ( $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{VO}_3$ ), никеллатов ( $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_4$ ) и манганитов ( $\text{La}_{1-x}(\text{Sr}, \text{Ca})_x\text{MnO}_3$ ,  $\text{La}_x\text{MnO}_3$ ) при учёте их **электронной** неоднородности и разделения фаз.

## Научная и практическая значимость:

- Изучена роль **наноскопических** электронных **неоднородностей** в формировании оптического отклика СК оксидов, проанализировано влияние их геометрической формы и пространственного упорядочения на оптические спектры.
- Впервые с единых позиций дана количественное описание оптических проявлений перехода металл-диэлектрик в **допированных** купратах и **манганитах**. Показано, что все основные наблюдаемые особенности их оптических спектров могут быть объяснены в последовательной модели электронного **разделения** фаз, разрабатываемой в данной работе.
- В широком диапазоне рассчитаны модельные спектры оптической проводимости и электронных потерь  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  ( $0 < x < 0.3$ ). Объяснены особенности спектров, наблюдаемые в среднем инфракрасном (ИК) диапазоне.
- Проведены модельные расчёты оптической проводимости **манганитов** ( $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ) • Дана интерпретация наблюдаемых в них спектральных особенностей в окрестности 1.0 – 1.5 eV.
- Дано объяснение и проведена количественная интерпретация большого линейного оптического дихроизма с необычной спектральной зависимостью в плёнках  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ .
- Исследованы эффекты геометрических резонансов в оптике микронеоднородных металлических сплавов  $\text{PdMn}_x\text{Fe}_{1-x}$ .
- Разработана модель низкочастотной зарядовой динамики **к>пратов** в условиях локализующего потенциала **допированных** примесей. На её основе исследованы эффекты коллективных мод и локальной структуры электронных неоднородностей в спектрах оптической проводимости.

## На защиту выносятся:

- Результаты расчётов оптической проводимости купратов ( $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ) и манганитов ( $\text{La}_{1-x}(\text{Sr}, \text{Ca})_x\text{MnO}_3$ ,  $\text{La}_x\text{MnO}_3$ ) в модели электронного разделения фаз.

- Интерпретация спектральных особенностей оптической проводимости купратов в среднем ИК диапазоне и **манганитов** в окрестности 1.5 эВ как геометрических **резонансов**, являющихся прямым проявлением **наноскопических** электронных **неоднородностей**.
- Результаты расчёта коэффициента поглощения тонких плёнок  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ ,  $\text{La}_x\text{MnO}_3$  вблизи **перколяционного** перехода металл-изолятор.
- Качественное объяснение и модельный расчёт **гигантского** линейного оптического дихроизма в тонких плёнках  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ .
- Результаты модельных расчётов низкочастотной оптической проводимости  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ .

**Апробация работы.** Основные результаты диссертации докладывались на ряде конференций, в том числе: **Conference on Electron Structure and Magnetism of Strongly Correlated Systems**, March 4-7 2001, Ekaterinburg, Russia. **International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids**, July 1-4 2001, **Lyon, France**. **Феофиловский** симпозиум по спектроскопии кристаллов, **активированных** ионами редкоземельных и переходных металлов, **24-28 сентября** 2001, Казань, Россия. **Second Moscow International Symposium on Magnetism**, Moscow, 20 - 24 June 2002. Международная школа-семинар **"Новые магнитные материалы"**, **24-28 июня** 2002, Москва, Россия.

**Структура работы.** Диссертация состоит из введения, трёх глав с выводами, заключения и изложена на 159 страницах машинописного текста, включая 36 рисунков, 1 таблицу, приложение и список литературы, содержащий 140 наименований. Диссертационная **работа** выполнялась при частичной финансовой поддержке гранта REC-005 (**CRDF**), а также грантов **INTAS** No. 01-0654, Минобразования No. **E02-3.4-392** и "Университеты **России**" No. UR.01.01.042, РФФИ No. 01-02-96404.

# ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ.

**Во введении** формулируются основные задачи диссертационной работы, их актуальность и место в современной научной проблематике, связанной с физикой оксидов.

**Первая глава** носит обзорный характер. В её первых двух параграфах даётся краткий анализ основных экспериментальных закономерностей в оптике купратов и манганитов.

В области фундаментального поглощения оптический отклик диэлектрических купратов [7] и манганитов [8] характеризуется **пиком** вблизи 2 eV. Другие интенсивные спектральные особенности образованы серией зон, максимумы интенсивности которых располагаются около  $\sim 5$  eV и 10 eV.

Эволюция оптических спектров при допировании отражает постепенную "металлизацию" системы и захватывает область диэлектрической щели и края фундаментального поглощения, выше которой спектры меняются относительно слабо во всём диапазоне концентраций. Формирующийся низкочастотный спектр **допированных** оксидов характеризуется рядом необычных свойств. Уже в **слабодопированных** составах ( $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ,  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ,  $x < 0.05 \div 0.1$ ) наблюдается быстрый перенос спектрального веса с края фундаментального поглощения к меньшим энергиям, где появляются новые спектральные особенности. В купратах они **располагаются** около  $\sim 0.5$  eV (известная **"MIR"** - полоса), а в **манганитах** - вблизи 1.5 eV. При возрастании  $x$  наблюдается их смещение к нулевой частоте с последующим развитием квазиметаллического низкочастотного отклика. При этом неизменность плазменной частоты, измеряемой по краю спектра отражения и по спектрам электронных потерь (**EEL**), при допировании, а также частотная зависимость хвоста оптической проводимости ( $\sim 1/\omega^a$ ,  $a < 2$ ) труднообъяснимы с точки зрения традиционной теории металлов. Температурная зависимость оптической проводимости также оказывается аномальной. Ниже  $\sim 1000$  **см<sup>-1</sup>** при понижении температуры спектры купратов и манганитов демонстрируют т.н. псевдошелевое поведение.

В третьем параграфе кратко рассматривается современное **состояние** теории оптического отклика СК оксидов.

Электронные спектры диэлектрических купратов и манганитов

были исследованы в работах [9, 10] в рамках кластерного подхода. Проведённый анализ показывает, что в широком спектральном диапазоне ( $\sim 1.5 - 10$  eV) оптические спектры **купратов** формируются **одно- и двух-центровыми** экситонными переходами с переносом  $\pi$ -э-ряда в кластерах **CuO<sub>4</sub>** [9]. Аналогичное исследование, проведённое для исходной системы семейства **манганитов** - **LaMnO<sub>3</sub>** - позволяет связать наблюдаемые спектральные особенности с электронными возбуждениями в октаэдрах МпОв, которые образуют до 60 **электро-дипольных** переходов между соответствующими многоэлектронными конфигурациями с энергиями в широком диапазоне от  $\sim 2.5$  eV до  $\sim 11$  eV.

Интерпретация оптического отклика **допированных** оксидов относится к числу наиболее важных нерешённых теоретических проблем. Объяснение эксперимента на основе различных вариантов модели Хаббарда и ***t*-J** - модели встречает **значительные** трудности. Так, для интерпретации инфракрасного поглощения (MIR - полосы) в **слабодопированных** купратах требуются завышенные значения обменного параметра  $J \simeq 0.25$  eV. Другую принципиальную проблему представляет универсальный характер низкочастотных спектров широкого ряда систем, имеющих разную электронную структуру и эффективную размерность, как в квазидвумерных купратах и трёхмерных **манганитах**.

Во второй главе разрабатывается общий подход к **описанию** оптических свойств **допированных** СК оксидов с учётом их электронной неоднородности.

Первый параграф содержит обзор основных экспериментальных результатов, указывающих на существование электронной **неоднородности наноскопического** масштаба в купратах и манганитах.

Во втором параграфе формулируется минимальная модель описания неоднородности в купратах и манганитах. На ранних этапах разделения фаз речь идёт о формировании **наноскопических** капель, отличающихся по своим электронным свойствам от окружающей их диэлектрической матрицы. В частности, их оптический отклик характеризуется сильным низкочастотным поглощением. Следует учитывать, что в условиях разделения фаз система характеризуется широким разбросом характерных масштабов и допускает разные уровни **описания**.



В оптическом диапазоне спектр каплей новой фазы можно упрощённо описывать формулой Друде, пренебрегая его сложной **низко**-частотной структурой. Поэтому общие оптические проявления неоднородности в оксидах можно исследовать на основе модели композита. В этом простейшем приближении наноскопические **неоднородности** могут быть представлены, как система **металлоподобных** каплей, диспергированных в диэлектрической матрице.

В третьем параграфе рассмотрено приближение среднего поля для гранулированных композитных сред, известное как теория **эф**-фективной среды [11], и в общем виде приводятся основные **соот**-ношения для расчёта эффективной диэлектрической проницаемости  $\epsilon_{eff}$  таких систем, которая вводится соотношением:

$$\langle E(\mathbf{r}) \epsilon(\mathbf{r}) \rangle = \epsilon_{eff} \langle E(\mathbf{r}) \rangle, \quad (1)$$

где  $E(\mathbf{r})$  - внутреннее поле,  $\epsilon(\mathbf{r})$  - подверженная случайным **флуктуациям** локальная диэлектрическая проницаемость, угловые скобки означают усреднение по неоднородности.

Сингулярное поведение локального поля в неоднородной среде, содержащей поляризующиеся **нано-частицы**, приводит к появлению в её оптических спектрах т.н. геометрических **резонансов**. Они **связа**-ны с возбуждением поверхностных **плазмонов** на границах раздела фаз и не имеют прямого аналога в однородных средах. В простейшем случае сферической частицы в диэлектрике условие резонанса имеет вид:

$$\epsilon_m(\omega^*) + 2\epsilon_d = 0, \quad (2)$$

откуда  $\omega^* = \frac{\Omega_p}{\sqrt{1 + 2\epsilon_d}}$ , и для включения использовать формулу Друде и пренебречь дисперсией вклада  $\epsilon_d$  диэлектрической м. **г**-**рицы**. Обобщение на случай эллипсоидальной частицы приводит к трём резонансным частотам:

$$\omega_i^* = \Omega_p \sqrt{\frac{L_i}{\epsilon_d - L_i(\epsilon_d - 1)}}, \quad (3)$$

где  $L_i$  - **деполяризация** факторы частицы, которые определяются её геометрической формой. В данной работе мы задавали форму эллипсоидальной частицы отношениями двух её полуосей к третьей, обозначенными  $a$ ,  $b$ .

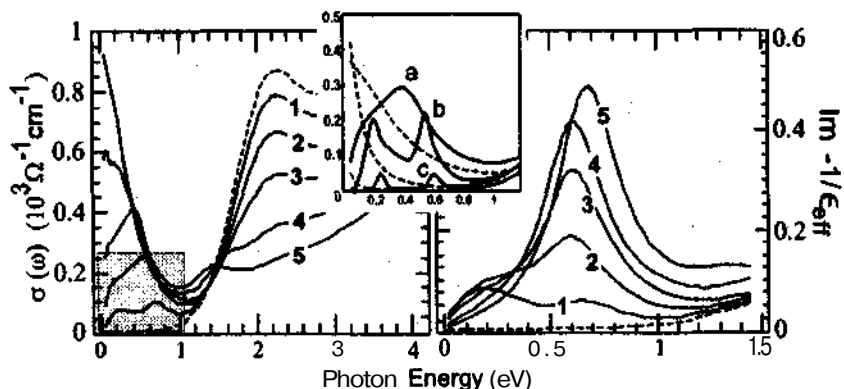
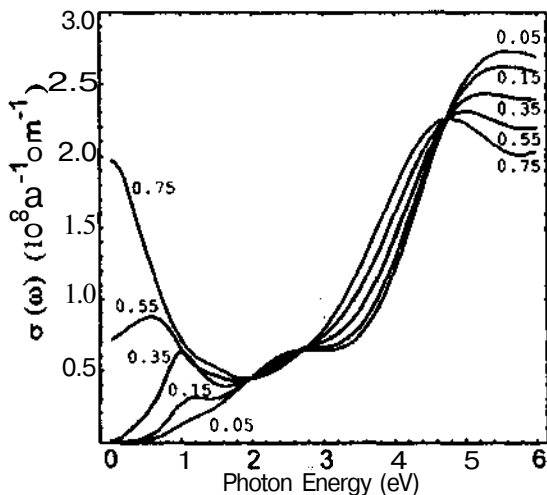


Рис. 1. Спектры оптической проводимости (слева) и электронных потерь (справа)  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  в модели эффективной среды. Кривые (1 - 5) рассчитаны для квазиметаллической фазы с плазменной частотой  $\omega_p = 1.9$  eV, параметром затухания  $\gamma = 0.35$  eV и объёмной долей  $p = 0.1 - 0.7$  с шагом  $\Delta p = 0.15$ . Пунктиром показан спектр при  $x = 0$ . На вставке показана эволюция ИК спектров проводимости на ранних стадиях разделения фаз: а:  $p = 0.25$ ,  $\gamma = 0.35$  eV б:  $p = 0.01$ ,  $\gamma = 0.1$  eV, с:  $p = 0.001$ ,  $\gamma = 0.05$  eV. Пунктиром показан расчёт  $\sigma(\omega)$  при тех же параметрах в простой "двухжидкостной" модели  $\sigma(\omega) = p\sigma_m + (1 - p)\sigma_d$ , где индексы  $m$ ,  $d$  относятся к проводящей фазе и диэлектрику, соответственно.

Четвёртый параграф посвящён анализу оптических спектров купратов в модели эффективной среды и начинается обсуждением условий её применимости в проблеме электронной неоднородности допированных оксидов.

В п. 4.1 представлены результаты моделирования спектров оптической проводимости и спектров электронных потерь  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (Рис. 1). Концентрации Sr в модели сопоставляется относительный объём зародышей проводящей фазы, развивающейся при допировании. Расчёт хорошо описывает эволюцию оптической проводимости при допировании, включая такие детали, как пересечение спектров составов с разными  $x$  приблизительно в одной ("изо-

Рис. 2. Модельные спектры оптической проводимости манганита  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ , рассчитанные для неоднородностей сферической формы. Числами напротив кривых отмечена объёмная доля квазиметаллической фазы с плазменной частотой  $U_p = 2.7$  eV и параметром затухания  $\gamma = 0.7$  eV.



бестической”) точке, что характерно для многих допированных СК оксидах и легко объясняется в модели разделения фаз.

Особенность около 0.5 eV является геометрическим резонансом, возникающим от включений квазиметаллической фазы в диэлектрике. Другой геометрический резонанс появляется вблизи 1.5 eV после перколяционного перехода и связан с частицами диэлектрика в металлическом окружении.

В целом, результаты модельных расчётов (Рис. 1) хорошо согласуются с экспериментом и дают полное описание всех наблюдаемых особенностей спектров СК оксидов в указанном диапазоне.

Спектры на Рис. 1 рассчитаны для случая, когда неоднородность представлена включениями с параметрами формы  $a \approx 0.2$ ,  $\beta = 0.07$ , вытянутыми и сильно сплюснутыми в  $\text{CuO}_2$ -плоскости. В работе показано, что вариация их геометрической формы включений приводит к значительному разнообразию возможных спектральных профилей оптических спектров, что легко объясняет имеющийся в литературе разброс в экспериментальных данных для систем номинально одинаковых составов типа тонких плёнок и объёмных образцов.

В п. 4.2 это продемонстрировано на примере модельных рас-

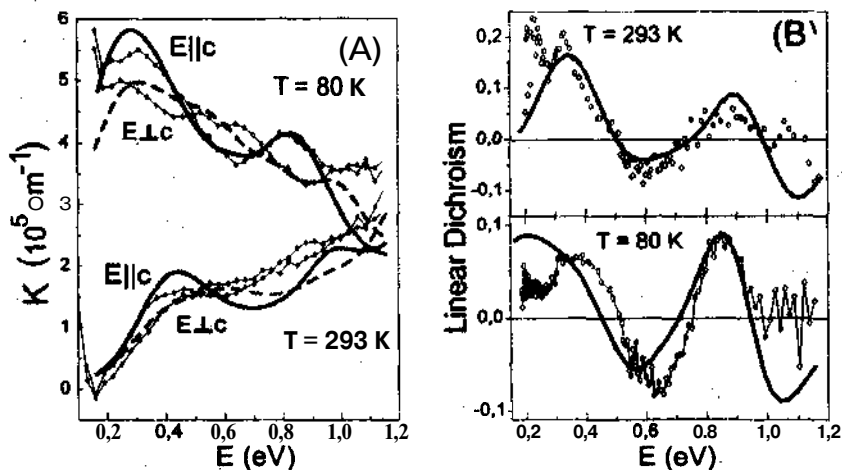


Рис. 3. Оптические спектры тонкой (60 nm) плёнки  $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  при  $T = 80 \text{ K}$  и  $T = 293 \text{ K}$ . Точки - эксперимент, линии - моделирование по теории эффективной среды. (А) Спектры поглощения в двух поляризациях (спектры в неполяризованном свете не показаны). (В) Спектральные зависимости линейного дихроизма.

коэффициентов пропускания и поглощения тонкой плёнки  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , где особенность вблизи  $1.5 \text{ eV}$  наблюдается в виде интенсивного резонанса.

В п. 4.3 представлены результаты модельных расчётов оптической проводимости оксида  $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{VO}_3$ . Здесь также, как и в  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , ИК спектр допированной системы характеризуется полосой вблизи  $0.5 \text{ eV}$ , которая хорошо воспроизводится в расчёте.

В пятом параграфе в рамках развиваемого подхода дано описание оптических свойств допированных манганитов.

В п. 5.1. описаны модельные расчёты оптической проводимости  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  (Рис. 2). Для монокристаллических образцов, имеющих высокосимметричную кубическую структуру, естественным является предположение о сферической форме неоднородностей ичи

их равновероятных деформаций вдоль эквивалентных направлений типа [111]. В этом случае модель воспроизводит геометрический резонанс вблизи  $1.0 \div 1.25 \text{ eV}$ . Вместе с результатами четвёртого параграфа, это может дать единую оригинальную интерпретацию спектральных особенностей, наблюдаемых ниже  $1.5 \text{ eV}$  в **допированных манганитах**, а в случае **купратов** - в среднем ИК диапазоне.

В п. 5.2. представлены результаты расчёта спектров **поглощения** тонких плёнок  **$\text{La}_x\text{MnO}_3$**  в температурном интервале  $80 - 295 \text{ K}$ , где происходит **перколяционный** переход металл изолятор. **Изменение** температуры моделировалось изменением объёма и плазменной частоты проводящей фазы.

В п. 5.3. дано количественное описание сильного оптического дихроизма в плёнках  **$\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$**  (Рис. 3). Обращает на себя внимание аномальное поведение дихроизма, который демонстрирует хорошо выраженные спектральные осцилляции необычно большой амплитуды и остаётся практически неизменным во всём исследованном температурном диапазоне. В тонкой плёнке под влиянием неустрашимых механических напряжений на границе с подложкой, эффектов **двойникования** и т.д. в системе капель новой фазы могут наблюдаться своеобразные эффекты упорядочения, когда вытянутые в определённом направлении капли образуют текстуру, напоминающую жидкий кристалл. Формирование текстуры приводит к **многократному** усилению низкосимметричных эффектов в оптических спектрах. Качественно, осцилляции дихроизма в упорядоченной текстуре **наноскопических** капель **удаётся** объяснить **избирательным** возбуждением геометрических резонансов (3), зависящим от ориентации электрического вектора световой волны относительно осей вытянутых эллипсоидальных частиц. Детальный расчёт позволяет получить хорошее количественное согласие с экспериментом. **Моделирование** спектра при комнатной температуре было выполнено для полной объёмной доли проводящей фазы  $p = 0.1$  и для  $p = 0.55$  при  $T = 80 \text{ K}$ . При этом мы считали, что частицы имеют форму вытянутых почти **аксиально-симметричных эллипсоидов**, форма которых задана параметрами  $a = 0.5$  и  $\beta = 0.42$ .

В шестом параграфе показано, что специфические проявления геометрических резонансов могут наблюдаться не только в **гетерофазных** системах типа **"металл-диэлектрик"**, но и в композитах, образованных проводящими фазами с существенно различными **метал-**

**лическими свойствами.** в рамках метода эффективной среды **про-**ведены расчёты оптической проводимости металлических сплавов  $\text{PdMn}_x\text{Fe}_{1-x}$  (Рис. 4), где в области концентраций  $0.2 < x < 0.8$  образуется многофазное микронеоднородное состояние, представляющее собой смесь **ферро-** и антиферромагнитных областей с **боль-**шей и меньшей проводимостью, соответственно. Около  $\sim 0.1$  eV в спектре проводимости состава с  $x = 0.7$  наблюдается узкий пик, не воспроизводимый в зонных расчётах. В модели эффективной среды он успешно описывается, как геометрический резонанс. При этом, учитывая, что на границах ФМ и АФ областей образуются слои с неколлинеарным магнитным порядком, была использована модель двуслойных включений, состоящих из **хорошо про-**водящего ядра и оболочки с ухудшенными **металличе-**скими свойствами.

В седьмом **парагра-**фе на основе **сравнения** рассчитанных спектров оптической **проводимости**  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  с экспериментом построена приближённая зависимость относительного объёма проводящей фазы от **степе-**ни допирования. Проведена оценка среднего размера неоднородности в режиме слабого допирования и получено значение  $\sim 18$  Å.

В восьмом параграфе кратко изложены основные выводы **данн** й главы.

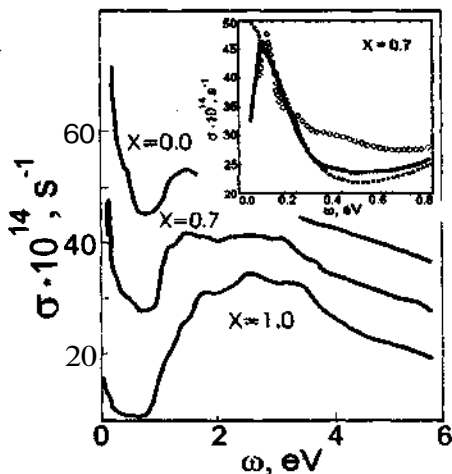
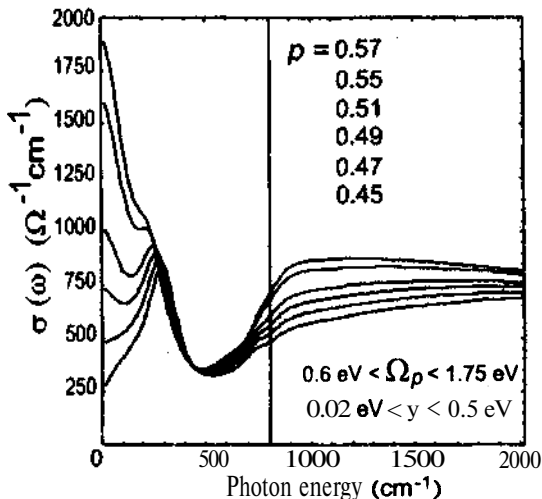


Рис. 4. Оптическая проводимость тройного сплава  $\text{PdMn}_x\text{Fe}_{1-x}$ . На вставке показана низкочастотная **особенность** микронеоднородного состава и результат обработки по теории эффективной среды (сплошная линия).

Рис. 5. Спектр оптической проводимости  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  в модели неоднородных металлических капель с концентрацией  $p$  (значения указаны на графике). Вертикальной чертой отмечена энергия переключения эффективной плазменной частоты  $\Omega_p$  и скорости релаксации  $\gamma$  с низкочастотного на высокочастотный режим.



**Третья глава** посвящена исследованию низкочастотного оптического отклика купратов.

В первом параграфе дан краткий обзор экспериментальных данных и основных теоретических направлений в проблеме т.н. псевдощелевого и маргинального поведения оптической проводимости купратов.

Во втором параграфе представлены результаты обработки спектров низкочастотной оптической проводимости  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (Рис. 5) в методе эффективной среды с описанием квазиметаллической фазы обобщённой формулой Друде со ступенчатой частотной зависимостью эффективной плазменной частоты и скорости релаксации.

В третьем параграфе формулируется микроскопическая модель низкочастотной зарядовой динамики в режиме разделения фаз, в которой доминируют эффекты коллективных плазменных колебаний электронных **капель**, локализованных в минимумах случайного потенциала примесей. Их вклад в оптическую проводимость **рассчи-**

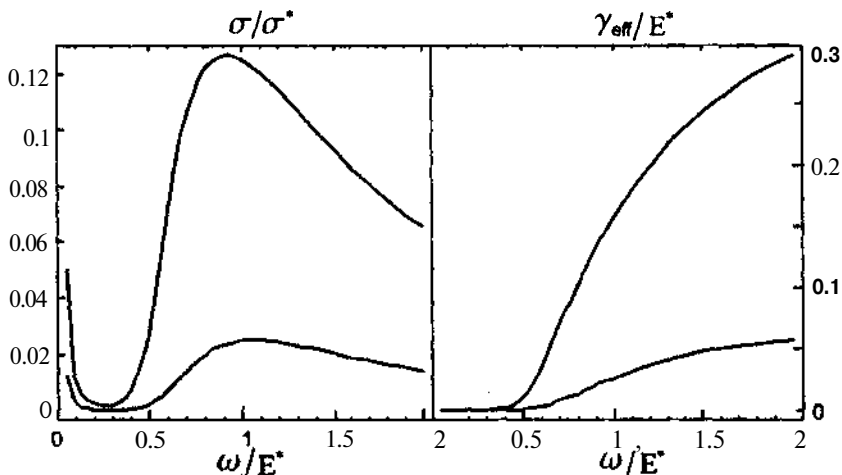


Рис. 6. Общий вид безразмерных спектров оптической проводимости (слева) и эффективной скорости релаксации в обобщённой формуле Друде (справа) для разных уровней беспорядка в системе. Рост максимума оптической проводимости при  $\omega/E^*$  отражает усиление локализации.

тывается по обобщённой формуле Друде:

$$\sigma(\omega) = \frac{i \omega_p^2}{\omega + M(\omega)}, \quad (4)$$

где  $M(\omega)$  - функция памяти, описывающая процессы релаксации тока. Эффективная плазменная частота и скорость релаксации.

В четвёртом параграфе приведён вывод основных соотношений теории функций памяти [12], для расчёта которой получается самосогласованное уравнение:

$$M(\omega) = 4U_0^2 \frac{n_i}{n} \int_0^\infty dq \frac{(\omega + M(\omega)) q^2 e^{-2\hbar q}}{(1+q^3)(q+q^4 - (\omega + M(\omega))\omega)} |F(q)|^2, \quad (5)$$

где  $U_0$  - амплитуда случайного примесного потенциала (глубина отдельной ямы),  $\hbar$  - расстояние от примеси ( $Sr^{2+}$  в случае



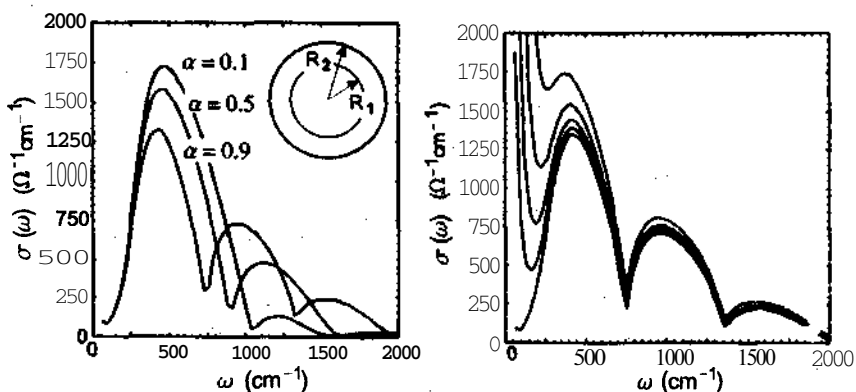


Рис. 7. Слева: спектры оптической проводимости, рассчитанные для неоднородностей типа кольца. Параметр  $\alpha$  равен отношению **внутреннего** радиуса кольца ко внешнему ( $\approx 30$  Å). Справа: вид спектров для кольца с  $\alpha = 0.9$  при значениях затравочного параметра релаксации  $\gamma_0 = 0.0, 0.002, 0.005, 0.08$  и  $0.01$  eV (нижним кривым соответствуют меньшие значения).

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ) до  $\text{SiO}_2$ -плоскости,  $n_i$  и  $n$  - соответственно концентрация примесей и капель,  $F(q)$  - форм-фактор, в котором содержится информация о распределении зарядовой плотности в капле. В случае **аксиально-симметричного распределения**, при учёте дискретной структуры капли на  $\text{CuO}_2$ -плоскости усреднённый квадрат модуля форм-фактора имеет вид:

$$|F(q)|^2 = \sum_{i,j} \rho_i \rho_j J_0(q r_{ij}), \quad (6)$$

где  $\rho_i$  - плотность заряда на  $i$ -узле,  $r_{ij}$  - расстояние между узлами,  $J_0$  - функция Бесселя первого рода, сумма берётся по узлам, включённым в каплю.

В пятом параграфе проведены численные расчёты оптической **проводимости** по формулам (4 - 5) для различных параметров задачи и распределений заряда в каплях (Рис. 6). Спектры характеризуются

ются широким асимметричным пиком, центрированным на частоте плазменных колебаний капель в **минимумах** неоднородного потенциального рельефа. Было найдено, что учёт неоднородной зарядовой структуры капли в формуле (6) приводит к появлению на фоне этой особенности дополнительной осциллирующей структуры (Рис. 7).

Для моделирования дополнительных механизмов релаксации **тока**, остающимися за рамками микроскопического рассмотрения, к функции памяти в (4) было добавлено постоянное слагаемое  $\delta M = \gamma_0$ , которое соответствует обычной формуле Друде. Справа на Рис. 7 показана эволюция спектров при изменении  $\gamma_0$ . Полученные **результаты** отражают характерные особенности оптической проводимости купратов ниже  $1000 \text{ cm}^{-1}$ .

В шестом параграфе сформулированы основные результаты данной главы.

**В заключении** сформулированы основные выводы, полученные в диссертационной работе:

1. Сформулирован общий феноменологический подход к описанию эффектов **наноскопических** электронных **неоднородностей** в оптических спектрах купратов, манганитов и некоторых других СК оксидов. Дана естественная интерпретация **наблюдаемых** в этих системах спектральных особенностей в видимом и среднем инфракрасном диапазоне.
2. На основе формализма эффективной среды рассчитаны **за** **з** **симости**  $\sigma(\omega, x)$  оптической проводимости от частоты и степени легирования для основных СК оксидов ( $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ,  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  и др.), которые хорошо согласуются с экспериментальными данными.
3. Показано, что в ИК области доминирующий вклад в **формирование** оптических спектров ( $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ) и ряда других СК оксидов связан с т.н. геометрическими **резонансами**, являющимися проявлением их неоднородной структуры. В **манганитах** ( $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ) они проявляются в окрестности 1.5 eV.
4. Показано, что в области геометрических **резонансов** возможно широкое разнообразие и невоспроизводимость оптических

спектров различных образцов неоднородных оксидов номинально одинакового состава, которое связано с неустраняемыми различиями в микротекстуре неоднородности, форме границ раздела фаз и т.д.

5. В рамках модели эффективной среды дана количественная интерпретация коэффициентов поглощения тонких плёнок **нестехиометрических** ( $\text{La}_x\text{MnO}_3$ ) и **допированных** ( $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ ) **манганитов** вблизи перехода металл-изолятор.
6. Показано, что в условиях внешних возмущений, связанных с **двойникованием** и механическими напряжениями на границе плёнка-подложка, может возникать пространственная текстура **наноскопической** неоднородности, которая приводит к **многократному** усилению локальных низкосимметричных **полей** и может быть источником аномально большой оптической **анизотропии**. На основе этих результатов дано количественное объяснение сильного линейного оптического дихроизма в пленках  **$\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$** .
7. На основе теории функций памяти разработана модель **низкочастотного** оптического отклика допированных **купратов**, связанного с коллективными плазменными модами в системе **квазиметаллических** капель новой фазы. Показано, что неоднородная зарядовая структура капель приводит к резонансным **особенностям** в спектре оптической проводимости. Учёт дополнительных механизмов релаксации тока позволяет моделировать эффекты псевдощелевого поведения. Полученные результаты важны для объяснения наблюдаемых особенностей микроволновых оптических спектрах купратов.

Основные результаты диссертации опубликованы в **следующих работах**:

1. A.S. Moskvina, E.V. Zenkov, Yu.D. Panov. Nanoscopic stripe-like inhomogeneities and optical conductivity of doped cuprates. Cond-mat/0103492, 23 March 2001.
2. А.С. Москвин, Е.В. Зенков, Ю.Д. Панов. Особенности **оптических** спектров допированных купратов и манганитов. Тез. до-

- кл. межд. конф. Conf. On Electron Structure and Magnetism of Strongly Correlated Systems, Ekaterinburg, March 4 -7, 2001, p. 152-154.
3. A.S. Moskvina, E.V. Zenkova, Yu.D. Panov. **Nanoscale inhomogeneities** and optical properties of doped **cuprates**. J. of Luminescence, **94-95**, p. **163-167**, 2001.
  4. A.S. Moskvina, E.V. Zenkova, Yu.D. Panov, N.N. Loshkareva, Yu.P. Sukhorukov, E.V. Mostovshchikova. Phase separation and **nanoscale** charge inhomogeneities in optical spectra of **manganites**. Abstract book of **XI-th Feofilov** symposium on **spectroscopy** of crystals activated by rare earth and transition metal ions. Kazan, September **24-28**, 2001, p. 113.
  5. A.S. Moskvina, E.V. Zenkova, Yu.D. Panov. Nanoscale inhomogeneities and optical spectra of doped cuprates. *ibid.*, p. 115.
  6. А.С. Москвин, Е.В. Зенков, Ю.Д. Панов. **Наноскопические** неоднородности и оптические свойства легированных купратов. ФТТ, т. 44, вып. 8, 2002, с. **1455-1458**.
  7. А.С. Москвин, Е.В. Зеиков, Ю.Д. Панов. Разделение фаз и проявление **наноскопических неоднородностей** в оптических спектрах **манганитов**. ФТТ, т. 44, вып. 8, 2002, с. 1452-1454.
  8. Ю.П. Сухоруков, Н.Н. Лошкарева, Е.А. Ганьшина, Е.В. Mostovshchikova, И.К. Родин, А.Р. Кауль, О.Ю. Горбенко, А.А. Босак, А.С. Москвин, Е.В. Зенков. - Электронная структура и разделение фаз в плёнках **La<sub>2</sub>MnO<sub>3</sub>** ( $0.83 < x < 1.10$ ): оптические и магнитооптические данные. ЖЭТФ, т. 96, No 2, 2003, с. 257-272.
  9. A.S. Moskvina, E.V. Zenkova, Yu.P. Sukhorukov *et al.* Nanoscale phase separation in **La<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>** films: evidence for the texture driven optical **anisotropy**. J.Phys.: Condensed Matter, 15, 2003, p. 2635-2643; **ArXiv:cond-mat/0211430**, 20 Nov 2002.
  10. Yu.P. Sukhorukov, N.N. Loshkareva, E.V. Mostovshchikova, A.S. Moskvina, E.V. Zenkova, E.A. Gan'shina, I.K. Rodin, A.R. Kaul,

**O.Yu. Gorbenko, A.A. Bosak.** Phase separation and electronic structure in  $\text{La}_x\text{MnO}_3$  ( $0.83 \leq x \leq 1.10$ ) films. **JMMM**, 258-259, p. **274-276**, 2003.

11. Н.И. Коуров, Ю.В. Князев, М.А. Коротин, А.С. Москвин, Е.В. Зенков. Особенности электронных свойств микронеоднородных сплавов  $\text{PdMn}_x\text{Fe}_{1-x}$ . Сборник трудов XVIII Международной школы-семинара "Новые магнитные материалы", Москва, 24-28 июня 2002, с. **910-912**.
12. Н.И. Коуров, Ю.В. Князев, Е.В. Зенков, А.С. Москвин. Явление геометрического резонанса в оптических свойствах микронеоднородных сплавов  $\text{PdMn}_x\text{Fe}_{1-x}$ . ФТТ, т. 45, вып. 5, 2003, с. 852-855.
13. A.S. Moskvin, E.V. **Zenkov**. Infrared optical response of strongly correlated cuprates: the effects of **topological** phase separation. **Cond-mat/0305157** 8 May 2003.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] A. Biswas, M. **Rajeswari**, R.C. **Srivastava et al.** Strain-driven **charge-ordered** state in  $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ . Phys. Rev. B, **63**, 2001, p. **184424-1 - 184424-7**.
- [2] **Elbio Dagotto**, Jan **Burgy** and **Adriana Moreo**. **Nanoscale** phase separation in colossal **magnetoresistance** materials: **lessons** for the cuprates. **Cond-mat/0209689** 2 Oct 2002.
- [3] K. M. Lang, V. **Madhavan**, J. E. Hoffman, E. W. Hudson, H. **Eisaki**, S. **Uchida**, J. C. Davis. Imaging the granular structure of high-Tc superconductivity in underdoped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8 + \delta$ . Nature, 415, 2002, p. 412-416.
- [4] I. **Iguchi**, T. **Yamaguchi**, and A. Sugimoto. **Diamagnetic** activity above  $T_c$  as a precursor to superconductivity in  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  thin film. Nature 412, 2001, p. **420-423**.
- [5] E. W. Hudson, K. M. Lang, V. Madhavan, S. H. Pan, H. **Eisaki**, S. **Uchida**, J. C. Davis. Interplay of magnetism and

**high- $T_c$  superconductivity** at individual Ni impurity atoms in  **$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$**  +  $\delta$ . Nature, 411, **2001**, p. 920 - 924.

- [6] G. Biotteau, M. Hennion, F. **Moussa** *et al.* Approach to the metal-insulator transition in  **$\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$**  ( $0 \leq x \leq 0.2$ ): Magnetic **inhomogeneity** and spin-wave anomaly. Phys. Rev. B, 64, 2001, p. 104421-1 104421-14.
- [7] S. Uchida, H. **Eisaki**, S. **Tajima**. Electron correlation and optical conductivity in **high- $T_c$**  copper oxides - origin of the mid-infrared absorption band. **Physica B**, **186-188**, **1993**, p. **975-980**.
- [8] K. **Takenaka**, K. **Iida**, Y. **Sawaki**, S. **Sugai**, Y. **Moritomo**, A. **Nakamura**. Optical Reflectivity Spectra Measured on Cleaved Surface of  **$\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$** : Evidence Against Extremely Small **Drude Weight**. J. Phys. Soc. **Jap.**, 68, 1999, p. **1828-1831**.
- [9] **A.S. Moskvin**, R. Neudert, M. Knupfer, J. Fink, and R. Hayn. Character of charge transfer **excitons** in  **$\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$** . Phys. Rev. B, 65, 2002, p. 180512-1 - 180512-4.
- [10] **A.S. Moskvin**. **One-center** transfer transitions in **manganites**. **Ph** s. Rev. B, **65**, 2002, p. 205113-205125
- [11] David J. Bergman and David Stroud, in Solid State Physics, H. **Ehrenreich** and D. **Turnbull**, **Eds.**, Academic Press, New York, 46, 1992, p. 148.
- [12] A. Gold. Dielectric properties of a disordered Bose condensate. Phys. Rev. A, **33**, 1986, p. **652-659**.